

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-050428

(43)Date of publication of application : 18.02.1997

(51)Int.Cl.

G06F 17/16
// G06F 17/00

(21)Application number : 07-204234

(71)Applicant : HITACHI LTD

(22)Date of filing : 10.08.1995

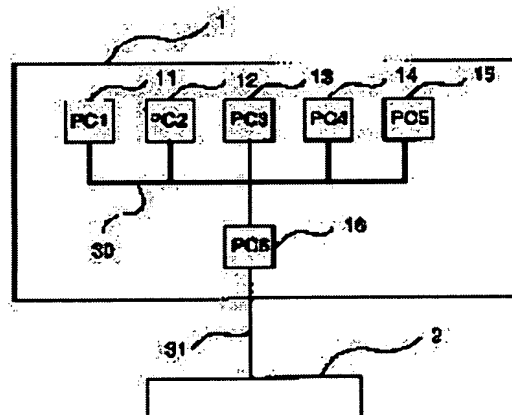
(72)Inventor : MARUIZUMI TAKUYA
USHIO JIRO
TAKEMURA YOSHIAKI
YURUGEN SHIYURUTEI

(54) CALCULATION SYSTEM FOR MOLECULAR ORBITAL ANALYSIS

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To execute an abinitio molecular orbital calculation with realistic time and computer resources to molecules handled in chemical industry and pharmaceutical industry and to perform the prediction of physical property and medical effect of the materials.

SOLUTION: By a computer cluster 1 composed of plural mutually connected computers, 1 electronic integration, 2 electronic integration and a Fock matrix factor constituted of the 1 electronic integration and the 2 electronic integration for the supplied material are generated, electronic integration data and the Fock matrix factor are transmitted through the computer cluster 1 and a transmission line 31 for connecting a vector computer to the vector computer 2, the intrinsic value and intrinsic vector of a Fock matrix is obtained on the vector computer 2 and the molecular orbital energy and wave function of the supplied material are outputted. Thus, the calculation time of the abinitio molecular orbital calculation is shortened and the prediction of the physical property and medical effect prediction to the molecules handled in chemical industry and pharmaceutical industry are made possible.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-50428 ✓

(43)公開日 平成9年(1997)2月18日

(51)Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
G 0 6 F 17/16			G 0 6 F 15/347	Z
// G 0 6 F 17/00		7925-5L	15/20	D

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平7-204234

(22)出願日 平成7年(1995)8月10日

(71)出願人 000005108

株式会社日立製作所

東京都千代田区神田駿河台四丁目6番地

(72)発明者 丸泉 琢也

東京都国分寺市東恋ヶ窪1丁目280番地

株式会社日立製作所中央研究所内

(72)発明者 牛尾 二郎

東京都国分寺市東恋ヶ窪1丁目280番地

株式会社日立製作所中央研究所内

(72)発明者 竹村 佳昭

東京都国分寺市東恋ヶ窪1丁目280番地

株式会社日立製作所中央研究所内

(74)代理人 弁理士 小川 勝男

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 分子軌道解析用計算システム

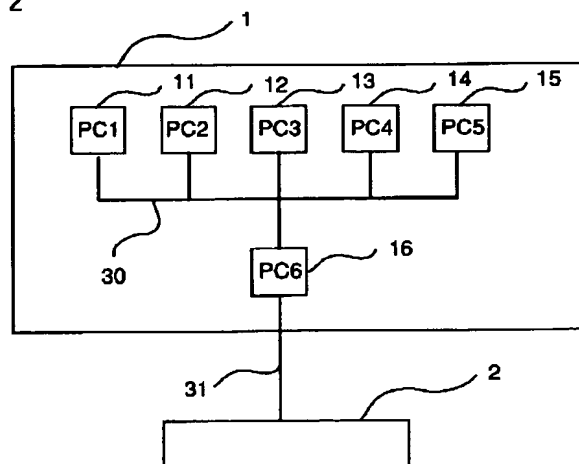
(57)【要約】

【目的】 本発明の目的は、化学工業や製薬工業で扱われる分子に対して、現実的な時間と計算機資源によるアブイニシオ分子軌道計算を実行可能とし、これら材料の材料物性予測や薬理作用予測を可能とすることである。

【構成】 複数の相互接続された計算機よりなる計算機クラスタ1により所与の材料に対する1電子積分、2電子積分、ならびに該1電子積分、該2電子積分より構成されるフォック行列因子を生成し、計算機クラスタ、ベクトル計算機接続用伝送線31を介して該電子積分データ並びにフォック行列因子をベクトル計算機2に伝送、該ベクトル計算機上で該フォック行列の固有値、固有ベクトルを求解、所与材料の分子軌道エネルギーと波動関数を出力するよう構成する。

【効果】 アブイニシオ分子軌道計算の計算時間短縮が可能となり、化学工業や製薬工業で扱われる分子に対して、材料物性予測や薬理作用予測が可能となる。

図 2



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 所与の材料に対する 1 電子積分、2 電子積分、ならびに該 1 電子積分、該 2 電子積分より構成されるフォック行列因子の生成機能を有する相互に接続された複数の計算機からなる計算機クラスタ、該計算機クラスタが生成する該 1 電子積分の一部、ならびにフォック行列因子をパイプライン処理機能を有するベクトル計算機に伝送する通信手段、該通信手段を介し伝送された該 1 電子積分の一部、ならびにフォック行列因子よりフォック行列を生成し、該フォック行列の固有値と固有ベクトルを求解、所与材料の分子軌道エネルギーと波動関数を出力するベクトル計算機から構成される分子軌道解析用計算システム。

【請求項 2】 計算機クラスタ生成データをベクトル計算機に伝送する通信手段が、該ベクトル計算機の主記憶装置に直結する入出力チャネル装置であることを特徴とする請求項 1 記載の分子軌道解析用計算システム。

【請求項 3】 該計算機クラスタを構成する個々の計算機がパーソナルコンピュータとワークステーションの任意の組み合わせより成ることを特徴とする請求項 1、2 記載の分子軌道解析用計算システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、化学工業、製薬工業において材料物性予測、薬理作用予測などに頻繁に利用される分子軌道解析処理、実行する分子軌道解析用計算システムに係わり、特に所与材料の 1 電子積分、2 電子積分、ならびにフォック行列因子の生成を複数の計算機からなる計算機クラスタにより分散的に実行し、生成データをパイプライン機能を有するベクトル計算機に転送、ベクトル計算機上でフォック行列の固有値と固有ベクトルを求解し、所与材料の分子軌道エネルギーと波動関数を高速に解法できる分子軌道解析用計算システムに関する。

【0002】

【従来の技術】 材料物性予測に利用される分子軌道解析では一般的に図 1 に示される計算処理フローで分子軌道

$$(uv|ds) = \langle Xu(1)Xd(2) | 1/R_{12} | Xv(1)Xs(2) \rangle \quad (4)$$

ただし R_{12} は電子 1 と電子 2 との距離を示す。

【0008】 (2)、(3) 式で示した 1 電子積分の個数は原子軌道総数の自乗個程度であるのに反し、(4) 式の 2 電子反発積分の個数は原子軌道総数の 4 乗に比例して増加する。たとえば原子軌道総数を 61 に設定した $SiH_2C_2H_4$ 分子では 2 電子積分の個数は 1,800,000 程度となり、倍精度積分計算で結果を高速メモリに保存するには 15MB 程度の容量が必要となる。また積分計算に必要な CPU 時間は一般的なメインフレーム計算機、たとえば日立 M880 計算機を利用するとき、10 秒程度の CPU 時間が必要となる。一般に化学工業、製薬工業において扱われる分子は $SiH_2C_2H_4$ の様に簡単な分子では

と付随する物性値が計算される。これらの具体的な計算方法は例えば、アブイニシオモレキュラーオービタルセオリー (HEHRE et al, AB INITIO MOLECULAR ORBITAL THEORY; Wiley-Interscience, 1986 年発行) を始めとする量子化学教科書に詳しく説明されているが、本発明に関連する部分について簡単に説明する。分子軌道計算は先ず、分子形状、具体的には分子内の原子種と原子座標の入力で始まる。これに応じて分子全体の波動関数 $|Y\rangle$ は各原子軌道 $|X_j\rangle$ の線形和として (1) 式の通り展開される。これは図 1 で '基底関数指定' と記したステップに相当する。

【0003】

$$|Y\rangle = \sum C_j |X_j\rangle \quad (1)$$

この展開係数 C_j を自己無撞着的に求める手順がアブイニシオ分子軌道計算の本質である。

【0004】 この際必要となる処理は、図 1 に示した流れ図の通り、電子積分計算ステップ、初期ベクトル計算ステップ、SCF 方程式計算ステップよりなる。最後のステップで化学結合、電荷分布をはじめとする物性値を計算し分子軌道計算は終了する。従来の分子軌道計算では図 1 に示した一連のステップを単一計算機上で処理するのが通例である。電子積分計算ステップとして 1 電子積分計算、2 電子積分計算の双方が計算され、高速メモリに記録、保存される。先ず、1 電子積分は (2)、(3) 式で示されるコア積分 H_{uv} と重なり積分 S_{uv} の 2 種である。

【0005】

$$H_{uv} = \langle Xu | H_{core} | Xv \rangle \quad (2)$$

$$S_{uv} = \langle Xu | Xv \rangle \quad (3)$$

ただし H_{core} は電子が他電子の影響を全く受けずに分子内を運動するときのハミルトニアンを示す。またブラケット表示 $\langle | \rangle$ は量子力学計算で通常利用されるものと同様である。

【0006】 次に 2 電子積分は (4) 式で示される 2 電子反発積分 $(uv|ds)$ である。

【0007】

なく、この数倍から数十倍の大きさを持つ。たとえば 10 倍とすれば、150GB もの大容量が必要となり、半導体メモリでは勿論のこと、磁気ディスクメモリを利用して保存することも不可能となる。また積分計算に必要な CPU 時間もまた原子軌道総数の 4 乗に比例して増加するため、約 30 時間もの CPU 時間が必要となり、積分計算値の入出力に要する I/O 時間まで考慮するとこの 10 倍以上もの処理時間がかかり、単一の分子軌道計算で 10 日間もの時間を要することとなる。以上の説明から容易に理解される通り、単一計算機を用い、積分計算値を高速メモリ上に保存、演算する従来の分子軌道計算では化学工業、製薬工業で日常用いられる分子の分

3

子軌道解析が不可能となると言う問題があった。

【0009】さて、実際の分子軌道解析では電子積分計算のあと、引き続きSCF(Self Consistent Field)方程式を解き、(1)式で示した展開係数 C_j を求め分子軌道を決定する計算処理が必要である。このステップは以下

$$F_{uv} = H_{uv} + \sum \sum P_{ds} [(uv|ds) - 0.25(ud|vs) - 0.25(us|vd)] \quad (5)$$

ただし、 P_{ds} は原子軌道総数の次元をもつ正方行列 P の要素を示し、各原子軌道の密度に対応することから P は密度行列と呼ばれる。具体的には(6)式の通り与えられる。

【0012】

$$P_{ds} = 2 \sum C_{di} * C_{si} \quad i=1,2,\dots,N \quad (6)$$

ただし、総和は占有分子軌道 N までの総和をとる。

【0013】計算の初期では分子軌道、即ち C_{di} 等が

$$\sum_v (F_{uv} - e_i S_{uv}) C_{vi} = 0 \quad u=1,2,3,\dots,N \quad (7)$$

これより分子軌道 $|Y_i\rangle$ の軌道エネルギーと展開係数の候補として e_i と C_{vi} が得られる。

【0016】この展開係数を用い再度(6)、(7)式により密度行列、ならびに軌道エネルギーを繰り返し計算し変化がある規定値より小さくなった時点で収束したとみなし計算を終了する。

【0017】このステップが図1でSCF方程式計算と

$$|Y_i\rangle = \sum |X_j\rangle C_{ji}$$

以上、述べたフォック行列より分子軌道を求めるステップでは(7)式で書かれる線形方程式を密度行列が収束するまで多数回繰り返し解く必要がある。通常の分子軌道計算では数十回から数百回この計算を繰り返さなければ密度行列は収束しない。線形方程式を解く時間は原子軌道総数の3乗に凡そ比例して増加するため、化学工業や製薬工業で扱われる分子に対しては先に述べた電子積分計算時間の増加に加え、さらに線形方程式解法に要する時間も増加すると言う問題がある。

【0020】

【発明が解決しようとする課題】以上述べたように、化学工業や製薬工業で扱われる分子に対して、アブイニシオ分子軌道計算を実行するには、現在一般的に利用されているメインフレームと呼ばれる大型計算機をもってしても記憶容量、計算時間の点から過大な負荷となり、これらの材料物性予測、薬理作用予測が容易には出来ないと言う課題があった。

【0021】本発明の目的は化学工業や製薬工業で扱われる分子に対して、現実的な時間と計算機資源によりアブイニシオ分子軌道計算を実行し、これら材料の材料物性予測や薬理作用予測を可能とする分子軌道解析用計算システムを提供することにある。

【0022】

【課題を解決するための手段】上記目的は、所与の材料に対する1電子積分、2電子積分、ならびに該1電子積分、該2電子積分より構成されるフォック行列因子の生成機能を有する相互に接続された複数の計算機からなる

4

の通り行われる。

【0010】まず、電子積分計算のステップで計算、保存されている1電子積分、2電子積分の値を用い(5)式でしめされるフォック行列要素 F_{uv} を計算する。

【0011】

定まっていないため、 P_{ds} を(6)式で計算することはできず、適当な初期値を仮定して(5)式によりフォック行列を求めることとなる。初期値としてはヒュッケル分子軌道などの展開係数がよく用いられる。図1で初期ベクトル計算と示したステップがこれに相当する。

【0014】次にこのフォック行列 F と先に求めた重なり積分 S よりなる行列方程式(7)を解く。

【0015】

示したステップに相当する。

【0018】軌道エネルギー e_i に対応する分子軌道 $|Y_i\rangle$ は(8)式の通りとなり、この分子軌道を用いて材料の結合性、電荷分布、そのほかの材料物性を求めて分子軌道計算は完了する。

【0019】このステップが

$$(8)$$

計算機クラスタ、該計算機クラスタが生成する該1電子積分の一部、ならびにフォック行列因子をパイプライン処理機能を有するベクトル計算機に伝送する通信手段、該通信手段を介し伝送された該1電子積分の一部、ならびにフォック行列因子よりフォック行列を生成し、該フォック行列の固有値と固有ベクトルを求解、所与材料の分子軌道エネルギーと波動関数を出力するベクトル計算機から構成される分子軌道解析用計算システムを用いることにより達成される。

【0023】また、上記目的は、計算機クラスタ生成データをベクトル計算機に伝送する通信手段が、該ベクトル計算機の主記憶装置に直結する入出力チャネル装置であるよう構成することにより、より効果的に達成される。

【0024】また、上記目的は、該計算機クラスタをパーソナルコンピュータとワークステーションの任意の組み合わせで構成することによりより効果的に達成される。

【0025】

【作用】本発明によれば、分子軌道計算の際、必要となる所与の材料に対する1電子積分、2電子積分、ならびに該1電子積分、該2電子積分より構成されるフォック行列因子の生成を相互に接続された複数の計算機からなる計算機クラスタにより分散実行させ、生成電子積分、ならびにフォック行列要素をベクトル計算機に転送、フォック行列の固有値と固有ベクトルの求解に必要な線形計算をベクトル計算機上で実行することにより化学

5

工業や製薬工業で扱われる分子に対して、現実的な時間と計算機資源によるアブイニシオ分子軌道計算実行を可能とし、ひいてはこれら材料の材料物性予測や薬理作用予測が可能となる。

【0026】

【実施例】以下、本発明の実施例について図面を用いて説明する。

【0027】図2は本発明による分子軌道解析用計算システムの一実施例の全体構成図である。

【0028】計算機11、12、13、14、15、16より構成される計算機クラスタ1が計算機クラスタ、ベクトル計算機接続用伝送線31を介してベクトル計算機2に接続される構成となっている。計算機クラスタ1は6台の計算機11、12、13、14、15、16により構成され、相互に計算機クラスタ内接続線30により相互接続されている。本実施例では、計算機11、12、13、14、15、16に486DXプロセッサをクロック周波数100MHzで動作させたパーソナルコンピュータを用いた。パーソナルコンピュータのOSにはUNIXを設定した。またベクトル計算機2には日立S810モデル20を用いた。同計算機は143MFL OPSのパイプライン演算機を4並列したベクトル計算機である。次に計算機クラスタ内接続線30並びにベクトル計算機接続用伝送線31には現在LAN用通信線とし頻繁に利用されているイーサネットを利用し通信プロトコルとしてTCP/IPを用いパーソナルコンピュータ間、並びに計算機クラスタ、ベクトル計算機間のデータ通信を行った。本実施例では6台の計算機により計算機クラスタ1を構成したが、計算機間の通信にパケット衝突などの問題が発生しない限り、特に台数に関する制約は無い。

【0029】さて、次に本実施例による具体的な分子軌道計算について述べる。

【0030】分子軌道計算にはGAMESS、Gaussianを初めとす流通ソフトウェアを利用する（これらの詳細は例えば、アブイニシオ分子軌道計算（HEHRE et al, AB INITIO MOLECULAR ORBITAL THEORY; Wiley-Interscience, 1986年発行）などの量子化学の教科書で解説されている）。計算機クラスタ1を構成する各計算機、並びにベクトル計算機2にはあらかじめこれらプログラムを実行可能な形態でインストールしておく。

【0031】分子軌道計算の具体的な手順は図1に示した通りであるため、本発明に関連する部分についていくぶん詳しく述べる。

【0032】まず所与の材料の構造、たとえば分子の場合にはその分子ジオメトリの入力、分子対称性、基底関数などを入力する。多くの場合、利用する分子軌道計算プログラムに固有な入力フォーマットで関連データを入力することとなるが、これには計算機クラスタ1を構成

6

するパーソナルコンピュータのいずれか1つにViなどのエディタを用いて入力すればよい。分子軌道計算システムに入力された基底関数は所与材料を構成する各原子上に中心を持つ原子軌道関数である。この原子軌道関数に対して、(2)、(3)、(4)式で示した1電子積分、2電子反発積分の計算が必要となるが、このうち計算量の最も多いものは2電子反発積分(uv|ds)である。本分子軌道解析用計算システムではこの積分計算が計算機クラスタを構成する各パーソナルコンピュータ上で分散処理される。分散は各パーソナルコンピュータへの負荷が均等になるように調節される。具体的には、所与材料の全原子軌道に対する2電子積分インデックス(ijkl)が各パーソナルコンピュータに均等分配され、対応する2電子積分(ij|kl)が各パーソナルコンピュータ上で別個に計算処理される。もちろん(ij|kl)と全く同じ値を持つ(kl|ij)などは当然一回のみ計算されるよう重複が避けられる。本分散処理は計算機クラスタを構成するいずれか一つの計算機がマスタとなり2電子積分インデックス(ijkl)分配を行えば容易に達成できる。このように生成された2電子積分は伝送線31を介してベクトル計算機2に転送され(5)式で表わされるフォック行列要素F_{uv}が計算される。次に(7)式で表わされる線形固有値方程式の解法がベクトル計算機上で反復され、分子軌道と軌道エネルギーが求められる。この処理は先に述べた電子積分計算と異なり、前段階の密度行列を入力として固有ベクトルと固有値を順次求めて行くため、複数計算機に分散処理させているのは通信ラグなどより、非常に効率のわるいものとなり、単独計算機上での処理となる。このフォック行列の固有値問題を解く処理は勿論計算機クラスタを構成するパーソナルコンピュータ上で行う事も可能であるが、一般にパーソナルコンピュータでは逐次処理による数値演算しか行えず、いわゆる行列演算に関するパイプライン処理ができないため、解法に多大の時間が必要となってしまう。一方、ベクトル計算機2によれば行列固有値をパイプライン処理演算により高速に求めることができ分子軌道とエネルギーを効率的に求めることが可能となる。ベクトル計算機による高速演算については例えば”スーパーコンピュータ（日本物理学会編、培風館発行、1985）”などの数値計算法を解説した教科書に詳しく述べられているのでここでは改めて説明しない。

【0033】次に、本実施例に示した分子軌道解析用計算システムを用いて行った計算結果について述べる。プログラムにはダイレクトSCFが行なえるGAMESSを利用した。基底関数を大きくとり、より具体的には6-31G*と呼ばれる基底関数（例えば、前掲のアブイニシオ分子軌道計算（HEHRE et al, AB INITIO MOLECULAR ORBITAL THEORY; Wiley-Interscience, 1986年発行）を参照）を用いて行なったSiH₂C₂H₄分子の計算（基底関数総数は61基底である）では以下の結果が得られた。全CPU時間は53秒、このうち2電子積分を初めとする積分計算に要した

7

CPU時間は50秒、固有ベクトルと固有値を求める反復処理に要したCPU時間は3秒であった。一方、固有ベクトルと固有値を求める反復処理をベクトル計算機2を用いず、計算機クラスタ1を構成するパーソナルコンピュータの一つを用いて行なったところ、反復処理に49秒のCPU時間を要した。また、2電子積分を初めとする積分計算を計算機クラスタ1を用いず、ベクトル計算機2のみを用いて行なったところ、これに要したCPU時間は96秒であった。これらの結果から、本実施例に示した分子軌道解析用計算システムを用いた場合、電子積分計算ならびに固有値問題解法の双方に於いて計算時間の短縮が大きくはかれる事がわかった。本実施例ではSiH₂C₂H₄分子という比較的小さな分子についての結果を示したが、化学工業や製薬工業などで利用される大分子の場合、計算時間の短縮効果はより著しいものとなる。

【0034】次に、本発明による分子軌道解析用計算システムのまた別の実施例を図3を用いて説明する。本実施例では先の実施例と異なり、計算機クラスタ1、ベクトル計算機2接続用伝送線をイーサネットに代わり、ベクトル計算機主記憶22に直接データを転送できるチャンネル入出力装置21接続用のチャンネル入出力装置接続用伝送線32を用いた構成になっている。本構成では主記憶22に直接、積分データやフォック行列要素を転送できるため、伝送にともなうTAT(turn aroundtime)時間の増加を抑える事ができる。本実施例を用いた分子軌道計算結果について述べる。対象は先の実施例で計算したSiH₂C₂H₄分子について行った。図2に示した構成では全CPU時間53秒、TAT時間195秒であったのが、本実施例に示した構成によれば全CPU時間は53

8

秒と変わらず、TAT時間は80秒と約3分の一に低減することができた。

【0035】以上二つの実施例で述べたとおり、本発明によれば従来の単一計算機を用いる分子軌道計算に比べ、CPU時間、TAT時間双方の短縮が可能となる。

【0036】

【発明の効果】本発明によれば化学工業や製薬工業で扱われる分子に対して、現実的な時間と計算機資源によるアブイニシオ分子軌道計算実行が可能となり、ひいてはこれら材料の材料物性予測や薬理作用予測が可能となる。

【0037】

【図面の簡単な説明】

【図1】アブイニシオ分子軌道計算の概略ステップを示す図。

【図2】本発明による分子軌道解析用計算システムの一実施例の構成を示す概略図。

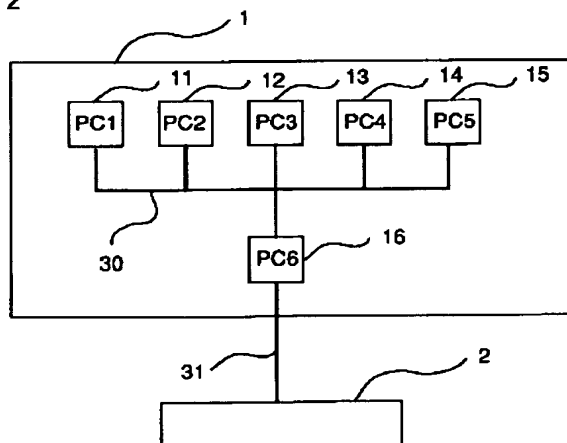
【図3】本発明による分子軌道解析用計算システムのまた別の一実施例の構成を示す概略図。

【符号の説明】

1……計算機クラスタ、2……ベクトル計算機、11、12、13、14、15、16……計算機クラスタを構成する相互接続された計算機群、21……チャンネル入出力装置、22……主記憶装置、23……ベクトルレジスタ、24……ベクトル演算プロセッサ、25……スカラレジスタ、26……スカラ演算プロセッサ、30……計算機クラスタ内接続線、31……計算機クラスタ、ベクトル計算機接続用伝送線、32……チャンネル入出力装置接続用伝送線。

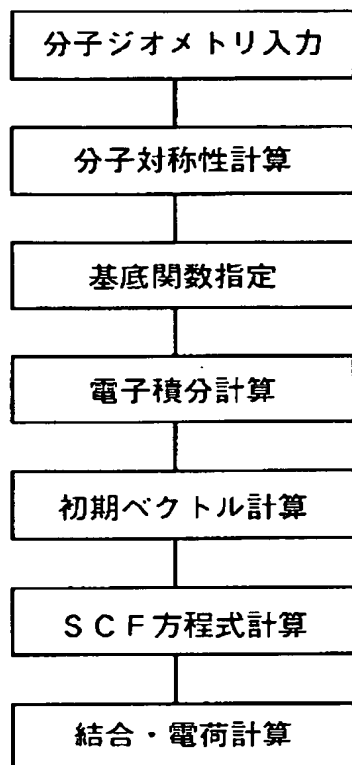
【図2】

図2



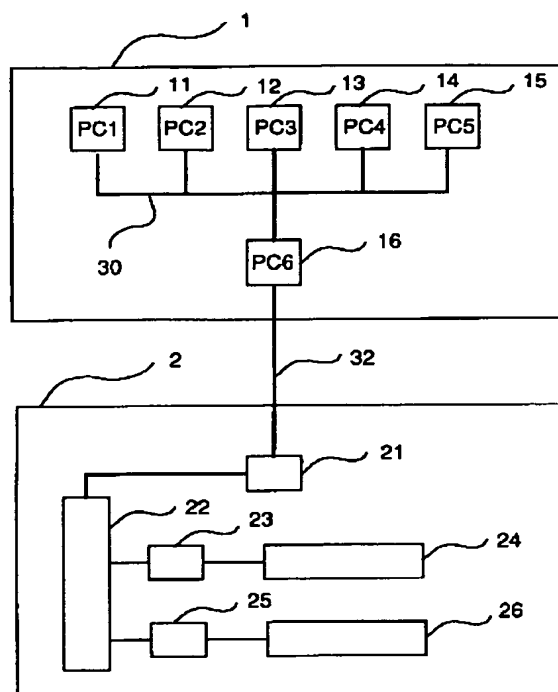
【図 1】

図 1



【図 3】

図 3



フロントページの続き

(72)発明者 ユルゲン・シュルティ
東京都国分寺市東恋ヶ窪 1 丁目 280 番地
株式会社日立製作所中央研究所内